

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-167513

(43)Date of publication of application : 25.06.1996

(51)Int.Cl.

H01F 1/08
B22F 3/00
B22F 3/087
H01F 1/053

(21)Application number : 06-311874

(71)Applicant : SUMITOMO METAL IND LTD
SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 15.12.1994

(72)Inventor : MATSUNAGA HIDEKI
KITAGAWA AKIO
ASANO MASAHIRO

(54) BONDED PERMANENT MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a bonded permanent magnet with advantages in magnetic characteristics, mechanical strength, heat resistance, corrosion resistance (anti-oxidization), and accuracy in dimensions.

CONSTITUTION: In raw material powder, R-Fe-B-based magnetic powder with anisotropic magnetic orientation (R is one or more kinds of rare earth materials including Y, and part of Fe can be substituted by Co) is covered with thermosetting resin of softening temperature of 40 to 100° C. Above the softening temperature, the raw material powder is heated up to a temperature at which melt viscosity should be 10 to 100,000 poise at shearing speed of 10sec-1. After a press step is carried out in a magnetic field, the resin is cured to form a bonded magnet.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.06.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 03.12.2002

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-167513

(43)公開日 平成8年(1996)6月25日

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 1/08				
B 2 2 F 3/00	C			
3/087				

H 0 1 F 1/ 08

A

B 2 2 F 3/ 02

H

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平6-311874

(22)出願日 平成6年(1994)12月15日

(71)出願人 000002118

住友金属工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(71)出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72)発明者 松永 秀樹

大阪市中央区北浜4丁目5番33号 住友金属工業株式会社内

(72)発明者 北川 晃朗

大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号

住友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74)代理人 弁理士 広瀬 章一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ボンド型永久磁石とその製造方法

(57)【要約】

【目的】 磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性(耐酸化性)、寸法精度に優れたボンド型磁石を製造する。

【構成】 磁気異方性を示すR-Fe-B系(Rは、Yを含む希土類元素から選ばれた1種もしくは2種以上、Feの一部はCoで置換されていてもよい)磁石粉末を、軟化温度が40~100℃の熱硬化性樹脂で被覆した原料粉末を、この熱硬化性樹脂の軟化温度以上であって、かつその剪断速度10 sec⁻¹での熔融粘度が10~100,000 poiseとなる温度に加熱し、磁場中でプレス成形した後、樹脂を熱硬化させて、ボンド型磁石を製造する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 磁気異方性を示す希土類・鉄系磁石材料の粉末を熱硬化性樹脂で被覆してなる原料粉末をプレス成形した後、加熱して熱硬化性樹脂を硬化させることによりボンド型永久磁石を製造する方法であって、前記熱硬化性樹脂が軟化温度40～100℃のものであり、前記プレス成形を磁場中において該熱硬化性樹脂の軟化温度以上の温間で行い、この成形温度における前記熱硬化性樹脂の剪断速度 10 sec^{-1} での熔融粘度が $10\sim 100,000\text{ poise}$ の範囲内であることを特徴とする、ボンド型永久磁石の製造方法。

【請求項2】 請求項1記載の方法で製造された、空隙率8体積%以下のボンド型磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性（耐酸化性）、寸法精度に優れたボンド型永久磁石の製造方法とこの方法で製造されたボンド型磁石に関する。

【0002】

【従来の技術】ボンド型永久磁石（以下、ボンド型磁石という）は、ハードフェライトや希土類合金などの磁石粉末を、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリエステル樹脂などの熱硬化性樹脂、またはポリアミド樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂などの熱可塑性樹脂をバインダーとして結合することにより、成形を容易にした磁石である。

【0003】磁石粉末を焼結した従来の焼結型の永久磁石に比べ、ボンド型磁石は、磁性を発現しない樹脂分を含むため磁気特性は多少劣るが、焼結による収縮がないため、高い寸法精度で種々の形状の磁石が簡単に製造できるという特徴がある。そのため、一般家庭の各種電気製品から大型コンピュータの周辺端末機器に至るまで広く応用されており、特にスピンドルモーター、ステッピングモーター等の小型モーターに近年多く用いられている。

【0004】このボンド型磁石の成形方法としては、射出成形、押出成形、圧縮成形（プレス成形）などが可能である。射出成形と押出成形では、磁石粉末とバインダーとの混合物が成形温度で流動しなければならないため、一般に熱可塑性樹脂をバインダーとして用い、バインダーの配合割合を比較的多くする必要がある。

【0005】一方、圧縮成形では流動性は必要ないため、バインダーとして熱硬化性樹脂が一般に使用される。圧縮成形によるボンド型磁石の一般的な製造においては、まず原料磁石粉末と熱硬化性樹脂（必要に応じて硬化剤などの添加剤を含有する）とを混合して、コンパウンドと呼ばれる磁石粉末と樹脂との混合物（樹脂で表面被覆された磁石粉末）を得る。この混合物を必要であれば粉砕した後、金型に充填してプレス機で圧縮成形し

て所望の形状に賦形し、加熱して被覆樹脂を硬化させると、ボンド型磁石が得られる。

【0006】圧縮成形は、押出成形や射出成形に比べると工程が多少複雑でコストが高いという欠点はあるが、成形時に流動する必要がないため、磁石粉末の充填率を上げる（樹脂の割合を低くする）ことが可能であり、より優れた磁気特性のボンド型磁石を得ることができる。

【0007】しかし、近年のコンピューター、通信機器をはじめとする電気・電子製品の小型化、高性能化の進展はめざましく、それに対応して、ボンド型磁石のさらなる磁気特性の向上が望まれている。そのためには、①用いる原料磁石粉末の磁気特性を向上させる、②磁石中の磁石粉末の配向性を増大させる、③磁石中の磁石粉末の体積充填率を大きくする、④磁石中の磁石粉末の酸化劣化、熱劣化を抑える、⑤磁石製造時の磁石粉末の損傷を抑えるといった対策が考えられる。

【0008】①の磁気特性の向上手段として、R-Co合金系（Rは希土類金属）やR-Fe-B合金系の希土類磁石粉末について、どの方向に磁化しても同じ磁気特性が発現する従来の等方性磁石粉末とは異なり、特定方向に磁気特性が向上した異方性磁石粉末が開発されている。この磁石粉末は、ある決まった特定方向（磁化容易方向）にのみ磁気特性が高いので、磁石体の内部において各磁石粉末の磁化容易方向が同一方向に揃っている（配向している）ことが、磁気特性の向上を得る条件となる。この磁石中の磁石粉末の配向性を増大させることが上記の②に示した課題である。

【0009】この配向は、一般に、成形時に磁場を印加して、各異方性磁石粉末をその磁化容易軸が磁場方向を向くように回転させることにより行われる。したがって、ボンド型磁石の場合には、成形時に個々の磁石粉末が回転する（すなわち、粉末表面の摩擦抵抗が低くなる）ような工夫が必要である。

【0010】一方、③の単位体積中の磁石粉末の充填量を多くするには、樹脂割合を減らすか、または、圧縮成形で作製する成形体の空隙を少なくすることが必要となる。しかし、ボンド型磁石の成形性、機械的強度を考慮すると、樹脂量を少なくすることには限界があるため、必要最低限の樹脂割合のもとで、成形体の空隙を減少し磁石粉末の充填率を向上させる方法が検討されてきた。

【0011】R-Fe-B系磁石は、酸素と結合しやすい希土類元素と鉄が主体となるため、空気中において酸化されやすく、そのまま熱硬化樹脂と混合して成形しても所定の磁気特性を発揮しえず、磁気特性の安定化が困難であることが経験されてきた。これには製造工程での外気による磁石粉末の酸化の影響が関与しているものと推測される。また、特に高温環境下で使用した場合に磁気特性の劣化が顕著であった。この磁粉の酸化劣化、熱劣化を抑制することが上記の④の課題である。

【0012】⑤の磁石製造時の磁石粉末の損傷を抑える

手段については、従来ほとんど考慮されてこなかった。しかし、磁石粉末が損傷すると、得られたボンド型磁石の磁気特性が劣化するので、磁石粉末の損傷抑制も磁気特性の向上にとって必要であると考えられる。

【0013】②～④に関しては、摩擦低減による充填率および配向性の向上と、磁石粉末の酸化防止を図るために、シラン系カップリング剤や潤滑剤で磁石粉末表面を被覆するか、あるいはこれらを熱硬化性樹脂成分に混入しておく方法がこれまでに提案されている。

【0014】例えば、特開昭60-220920号公報では、磁石粉末の表面を潤滑剤で被覆し、プレス成形中における磁石粉末相互間および磁石粉末とバインダー樹脂間の摩擦を低減させ、ボンド型磁石の密度と磁石粉末の配向度を向上させ、磁気特性の向上を図っている。この方法で得られたボンド型磁石は、潤滑剤を用いない場合と比較して、磁石粉末の充填率が增大するため磁気特性には優れているが、磁石粉末と樹脂との密着性が低下するため、機械的強度および耐食性（耐酸化性）が低下するという問題がある。

【0015】特開平3-74810号公報には、表面にシラン系カップリング剤を被覆した希土類・鉄系磁石粉末と、硬化剤および潤滑剤を添加混合したエポキシ樹脂との混合物を、プレス成形後、加熱硬化させる方法が開示されている。この方法によれば、空気中における希土類・鉄系磁石粉末の酸化を抑制し、高温においてもこの作用は持続することから、耐熱性のある程度付与することができる。また、結合剤であるエポキシ樹脂中に潤滑剤を添加混合させてあるため、成形時に磁石粉末相互間およびこの磁石粉末とエポキシ樹脂との間の摩擦を低減させる結果、成形性の向上と、磁石粉末の充填率の増大による磁気特性の向上が可能となる。しかし、シラン系カップリング剤等による磁石粉末の表面処理だけでは、潤滑剤の添加による機械的強度の低下を抑えられず、また耐熱性・耐食性（耐酸化性）の向上は不十分である。

【0016】シラン系カップリング剤や潤滑剤等による磁石粉末の表面処理では、圧縮成形により、磁石粉末の十分な充填性、磁石粉末の高い配向性、熱劣化・酸化劣化の抑制、および磁粉損傷の抑制を行うことができず、また機械的強度が低下するなどの問題も生じるので、バインダー樹脂以外の添加剤による効果ではなく、バインダー樹脂そのものによる磁石粉末同士間の潤滑効果に着目した方法も提案されている。

【0017】例えば、特開平4-80901号公報には、磁石粉末の表面を室温固体の熱硬化性樹脂で被覆し、樹脂の軟化温度～硬化温度の間の温度に加熱して、バインダー樹脂の流動性を高めた状態で温間プレス成形することによって、磁石中の磁石粉末充填率を向上させ、磁気特性、機械的強度および耐酸化劣化性の向上を図っている。この方法で用いる磁石粉末はR-Fe-B系合金を超急冷処理した磁気等方性の磁石粉末であり、無磁場でブ

レスするので、磁石粉末の配向性の向上については全く考慮していない。また、磁石製造時の磁石粉末の損傷に関する考察もなされていない。

【0018】特開昭60-194509号公報では、磁石粉末の表面を室温固体の熱硬化性樹脂で被覆し、上記と同様に樹脂軟化温度以上の温度の温間で磁場中にてプレス成形し、磁石中の磁石粉末充填率を向上させ、磁気特性、機械的強度、および寸法精度の向上を図っている。この方法で用いる磁石粉末はR-Co系またはR-Fe系合金を熱処理した磁気異方性の磁石粉末であるが、プレス時の磁場による磁石粉末の配向性が向上したとの報告はない。また、磁石製造時の磁粉の損傷に関する考察もない。

【0019】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来技術に存在する問題点を解消して、磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性（耐酸化性）、寸法精度に優れたボンド型磁石を製造するための方法を提供することを目的とする。

【0020】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、かかる課題を解決すべく、熱硬化性樹脂をバインダーとして圧縮成形を行うボンド型磁石の製造において、樹脂の軟化温度と硬化温度の測定、および熔融粘度の温度依存性を調査した。また、磁場中温間プレス成形を温度を変えて行い、得られたボンド型磁石の寸法精度、密度、磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性（耐酸化性）、さらには磁石粉末の充填率、配向性、損傷（割れ、歪み）の程度を調べて、下記の知見を得た。

【0021】熔融した樹脂の流れ易さ（熔融粘度）は温度に大きく依存し、圧縮成形中の樹脂の流れ易さが、圧縮成形されたボンド型磁石における磁石粉末の充填率、磁石粉末の配向性や損傷の程度に大きく影響する。従って、圧縮成形時の樹脂の流れにより生ずる潤滑性の差が、圧縮成形されたボンド型磁石の磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性（耐酸化性）、寸法精度、密度に大きな影響を及ぼす。つまり、圧縮成形時に磁石粉末が流動し易いほど、圧縮成形中の磁石粉末相互間の摩擦が低減し、充填率と配向性が向上して、磁石粉末の損傷が抑えられる結果、上記の各種特性が向上するのである。そして、この温間磁場中プレスによる上記効果は、特に磁気異方性を示すR-Fe-B系（即ち、希土類・鉄系）磁石粉末の場合に顕著である。

【0022】以上の知見に基づいて、本発明により、磁気異方性を示す希土類・鉄系磁石材料の粉末を熱硬化性樹脂で被覆してなる原料粉末をプレス成形した後、加熱して熱硬化性樹脂を硬化させることによりボンド型永久磁石を製造する方法であって、前記熱硬化性樹脂が軟化温度40～100℃のものであり、前記プレス成形を磁場中において該熱硬化性樹脂の軟化温度以上の温間で行い、この成形温度における前記熱硬化性樹脂の剪断速度10 s

ec⁻¹での溶融粘度が10~100,000 poise の範囲内であることを特徴とする、ボンド型永久磁石の製造方法が提供される。

【0023】

【作用】本発明の方法で製造されるボンド型磁石は、空隙率が8体積%以下、好ましくは5.0体積%以下、特に好ましくは2.0体積%以下である。空隙率が8体積%を超えると、高い残留磁束密度(B_r)が得られず、また機械的強度が減少する。さらに、空隙率が8体積%を超えると、空隙中の酸素や、空隙を通路としてボンド型磁石内に侵入する酸素と水に起因する磁石粉末の酸化劣化が生じやすく、磁気特性の劣化を引き起こす。なお、本発明において、空隙率は次式で表される。

【0024】

【数1】

$$\frac{(\text{理論密度}-\text{実測密度})}{\text{理論密度}} \times 100 (\%)$$

【0025】上記範囲の空隙率は、以下に説明する本発明の方法によりボンド型磁石を製造することによって達成することができる。

【0026】本発明で使用する磁石粉末は、希土類・鉄系、即ち、R (但し、RはYを含む希土類元素から選ばれた1種または2種以上) と、FeまたはFeおよびCoと、Bとを基本組成とするR-Fe-B系合金 (Feの一部はCoで置換されていてもよい) であって、磁気異方性を有する粉末を使用する。磁気異方性は、例えば、700~900℃で水素化処理し、その後減圧下で脱水素化処理を行うことにより付与できる。別の手法として、熱間後方押出加工により磁気異方性を発現させたR-Fe-B系磁石粉末 (例えば、ゼネラルモーターズ社製のMQ-3粉末) も本発明に使用できる。

【0027】磁石粉末の粒度は特に制限されないが、粒径が20μm未満の磁石粉末を使用すると、保磁力、磁石の減磁曲線の角型性等の磁気特性の劣化が見られ、さらに比表面積の大きな微粉末は耐熱性と耐食性 (耐酸化性) の面からも問題が生じる。従って、磁石粉末は20μm未満の微粒を含有しないのが望ましい。

【0028】この磁石粉末は、予めバインダーの熱硬化性樹脂と混合して使用する。即ち、圧縮成形で金型に投入するのは、磁石粉末を熱硬化性樹脂で被覆した原料粉末であり、プレス成形をこの樹脂の軟化温度以上の温間で磁場中にて行う。

【0029】熱硬化性樹脂の種類は特に制限されないが、従来より圧縮成形によるボンド型磁石に使用されているエポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリエステル樹脂などを用いることができる。好ましい熱硬化性樹脂はエポキシ樹脂である。熱硬化性樹脂は、必要に応じて硬化剤、硬化促進剤と一緒に使用する。

【0030】熱硬化性樹脂は、軟化温度が40~100℃の

範囲内のものを使用する。樹脂の軟化温度は好ましくは60~90℃である。従って、この樹脂は室温では固体である。樹脂の軟化温度が100℃より高くなると、金型に投入した原料粉末を樹脂の軟化温度以上に加熱するのに時間がかかり、また加熱時の温度調整と磁場印加のための磁気回路の設計が難しくなるなどの問題が生ずる。

【0031】熱硬化性樹脂が上記のように軟化温度40℃以上で、室温で固体であると、金型投入時に原料粉末を流動性に富む粉体として取り扱える。つまり金型への充填性が良くなり、均質な成形体得られ、成形体中の局部的な密度の変動が小さく、また、圧縮成形体の密度が増大し、磁石粉末の充填率が向上する。また、成形体の機械的強度も高いため、成形体の端面や角部の欠けが生じにくい。

【0032】熱硬化性樹脂は、磁石粉末の表面を被覆するように磁石粉末と混合する。この樹脂被覆は、バインダーの熱硬化性樹脂を低粘度液状 (例えば、適当な有機溶媒に溶解した低粘度の樹脂溶液) の形態で磁石粉末と混合することにより達成される。低粘度液状の形態とは、樹脂溶液に限定されるものではなく、樹脂のエマルジョン、懸濁液などの形態であってもよく、熱硬化性樹脂の溶融粘度が小さい場合には、樹脂の溶融液の形態であってもよい。また、樹脂の均一な被覆が可能であれば、他の被覆方法も採用できる。磁石粉末を樹脂で被覆した原料粉末を使用することにより、原料粉末中に樹脂が常に均一に分布し、成形体の隅々まで確実に樹脂が均一に行き渡るので、その端部や角部での磁石粉末の脱落が極めて少なくなり、寸法精度が向上するという長所に加えて、成形体の密度が高くなるという利点もある。

【0033】磁石粉末の被覆に使用する樹脂液には、所望により、シラン系カップリング剤、潤滑剤などの添加剤を少量配合することもある。また、前述した従来技術のように、磁石粉末を予めシラン系カップリング剤または潤滑剤で表面処理しておくこともできる。

【0034】熱硬化性樹脂 (硬化剤や硬化促進剤を含む) の配合量は、磁石粉末に対して1~10重量%、特に1~4重量%の範囲内とするのが好ましい。樹脂の配合量が1重量%未満では、ボンド型磁石内の磁石粉末の結合が不十分となり、成形性が悪く、かつ機械的強度が著しく低下する。一方、樹脂の配合量が10重量%を超えると、磁石粉末の充填率が小さくなり、所定の高磁気特性を発揮できなくなる。

【0035】本発明においては、磁石粉末と熱硬化性樹脂を含有する原料粉末を、樹脂の軟化温度以上に加熱して、磁場中で温間プレス成形する。原料粉末の加熱温度は、樹脂の硬化温度より低温とすることが好ましい。磁場中プレス成形時に樹脂が軟化し、溶融状態となっているため、磁石粉末相互間および磁石粉末と樹脂との間の摩擦が低減する。その結果、ボンド型磁石の空隙が少なく、密度が高くなって、磁石粉末充填率が増大すること

から、磁気特性、機械的強度、耐熱性および耐食性（耐酸化性）が向上する。

【0036】また、摩擦が低減すると、磁場中で磁化容易方向に揃うための磁石粉末の回転が容易になり、ボンド型磁石中の磁石粉末の配向度が向上することによる磁気特性の向上効果も大きくなる。

【0037】さらに、磁気異方性のR-Fe-B系磁石粉末は、磁気異方性発現のために一般に熱処理を受けていることから粉末の強度が低下しており、プレス圧力により破砕・歪みを受けた場合に損傷して微粉化し易く、この磁石粉末の損傷がボンド型磁石の磁気特性の低下につながっていたことを本発明者らは究明した。上記のように樹脂の軟化温度以上でプレス成形を行うことにより、磁石粉末相互間および磁石粉末と樹脂間の摩擦が低減すると、プレス成形中の磁石粉末の損傷の抑制にも有効であり、これも磁気特性の向上に寄与する。

【0038】この温間プレス成形時に樹脂の熔融粘度が10~100,000 poise の範囲内となるように成形温度を選択する。本発明において「熔融粘度」とは、剪断速度10 sec⁻¹の場合の値を意味する。樹脂の熔融粘度が10 poiseより小さいと、プレス金型内で磁石粉末と樹脂の分離が起こり、均一に磁石粉末が分散した成形体が得にくくなる。一方、樹脂の熔融粘度が100,000 poise より大きいと、プレス成形時の磁石粉末相互間および磁石粉末と樹脂との間の摩擦低減とそれによる上記効果が十分に発揮されない。この熔融粘度は、より好ましくは10~15,000 poise の範囲内である。

【0039】本発明による磁場中温間プレス成形は、磁石粉末と熱硬化性樹脂を含有する原料粉末をプレス金型に充填し、金型内の原料粉末をバインダー樹脂の軟化温度以上の温度に加熱し、次いで磁場の印加下に加圧して圧縮することにより実施される。金型内の原料粉末の加熱は金型を加熱して伝熱により行うことが簡便である。このための金型の加熱手段としては、例えば、抵抗加熱、油などの熱媒体による加熱、高周波誘導加熱などが可能である。

【0040】磁場の印加方向は、プレス方向と平行な平行磁場（縦磁場ともいう）と、これと垂直な垂直磁場（横磁場ともいう）のいずれでもよい。磁界強度は特に制限されないが、通常は6~20 kOeの範囲内である。プレス圧力（加圧力）は2~10ton/cm² の範囲内が適当である。

【0041】プレス成形後、脱型して成形体を加熱設備に移してさらに加熱し、バインダー樹脂を熱硬化させると、ボンド型磁石が得られる。この加熱条件は、樹脂の熱硬化が完全に起こるように、樹脂種や硬化剤、硬化促進剤の種類に応じて選択する。加熱雰囲気は、磁石粉末の酸化を避けるために、不活性雰囲気とすることが好ましい。得られたボンド型磁石は、必要により、常法に従って塗装やメッキなどの表面処理を施す。

【0042】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明する。実施例中、%は特に指定のない限り重量%である。

【0043】

【実施例1~4】

磁石粉末

本実施例で用いた磁石粉末は次のようにして作製した。28%のNd、10%のCo、1%のGa、1%のB、残部がFeの組成を有するNd-Fe-B系合金を850℃の水素ガス中に保持して、Ndの水素化物、Fe₃B、Feに分解した後、この温度領域で水素圧を下げ、Ndの水素化物から水素を解離させ、微細なNd、Fe₃B結晶体を主体とする磁石粉末を作製した。得られた磁石粉末をさらに粉砕し、分級して、粒度分布が38~300 μmの範囲内（平均粒径180 μm）の磁気異方性を有する磁石粉末を得た。

【0044】磁石粉末の樹脂被覆

常温で固体のビスフェノールA型エポキシ樹脂（油化シエルエポキシ（株）製、エピコート1001、軟化温度64℃）30%と硬化剤7%を有機溶媒のメチルエチルケトン63%に溶解し、25℃での粘度が5 cps の低粘度液状のエポキシ樹脂液を得た。使用したエポキシ樹脂の各種温度における熔融粘度（剪断速度10 sec⁻¹での値）をキャピラリーレオメーター法により測定しておいた。

【0045】上記の磁石粉末とこのエポキシ樹脂液とを、磁石粉末に対する樹脂固形分（エポキシ樹脂+硬化剤）の割合が3重量%となるように混合し、室温で放置してメチルエチルケトンを蒸発させた後、乳鉢で解砕して、磁石粉末がエポキシ樹脂で被覆された成形用の原料粉末を調製した。

【0046】プレス成形

上で得た原料粉末を金型に充填した後、熱媒油により金型を表1に示す所定の樹脂温度になるまで加熱し、10 kOeの垂直磁場（横磁場）の印加下に加圧6 ton/cm² で圧縮成形した。脱型後、成形体をArガス中で150℃に60分間加熱してエポキシ樹脂を硬化させ、ボンド型磁石サンプルを得た。各実施例について、長さ100 mm、幅10 mm、厚さ5 mmの短冊形状と10 mm 立方の立方形状の2種類のボンド型磁石サンプルをそれぞれ複数個作製した。

【0047】得られたボンド型磁石サンプルの特性を、(1) 磁気特性測定、(2) 曲げ強度試験、(3) 耐熱試験、(4) 耐湿試験、(5) 微粉発生量の測定、(6) 外観検査、(7) 寸法・形状測定、により評価した。試験方法を次に述べる。

【0048】(1) 磁気特性測定

立方形状のボンド型磁石サンプルを用い、これを40 kOeで着磁後、BHトレースにより残留磁束密度(B_r)、保磁力(iH_c)、減磁曲線の角型性(H_K)ならびに最大エネルギー積(BH_{max})を測定した。また、磁石粉末の配向度を次式により算出した。但し、Br(//)は圧縮成形時の配向

方向と平行方向のBr、Br(⊥)は圧縮成形時の配向方向と垂直な方向のBrである。

【0049】

【数2】

$$\frac{\text{Br}(\parallel)}{\text{Br}(\parallel) + \text{Br}(\perp)} \times 100(\%)$$

【0050】(2) 曲げ強度試験

短冊形状のボンド型磁石サンプルを用いて、JIS K7203の硬質プラスチックの曲げ試験方法に準じて行った。支点間距離は75mm、試験速度は2mm/分で行い、測定結果から曲げ破壊強度を算出した。

【0051】(3) 耐熱試験

立方形状のボンド型磁石サンプルを120℃の雰囲気内に1000時間放置した後、試験片の磁気特性を(1)に述べたように測定し、減磁曲線の角型性H_kの低下率で評価した。

【0052】(4) 耐湿試験

立方形状のボンド型磁石サンプルを80℃に予熱した後、80℃、90%の雰囲気内に24時間放置した。この放置後の試験片表面の錆発生状況を目視により観察し、錆発生数を計数して、次の基準で評価した。

○：錆発生なし、

×：錆発生数3～5個/cm²。

【0053】(5) 微粉発生量の測定

プレス成形した熱硬化前の10mm立方の成形体のバインダー樹脂部分をメチルエチルケトンで溶解除去し、残った磁石粉末をふるいにより粒度別に分級して、粒度<38μmの微粉の発生量を測定した。この微粉発生量により磁石粉末の損傷度を評価した。つまり、原料磁石粉末には含まれていなかった粒度<38μmの微粉の発生量が多いほど、磁石粉末の損傷が大きいと評価される。

【0054】(6) 外観検査

* 【表1】

	磁石粉末	樹脂温度(℃)	樹脂の溶解粘度(poise)	磁石外観	磁石の寸法・形状	磁石空隙率(vol%)	磁石粉末充填率(vol%)	磁石密度(g/cm ³)
実施例1	Nd-Fe-B	100	150	○	○	2.0	80.3	6.33
実施例2	Nd-Fe-B	85	950	○	○	2.8	79.6	6.28
実施例3	Nd-Fe-B	75	11000	○	○	3.4	79.1	6.24
実施例4	Nd-Fe-B	65	88000	○	○	4.2	78.5	6.19
比較例1	Nd-Fe-B	25	—	×	×	10.4	73.4	5.79
比較例2	SmCo	100	150	○	○	1.9	80.7	7.15
比較例3	SmCo	85	950	○	○	2.1	80.5	7.13
比較例4	SmCo	75	11000	○	○	2.2	80.3	7.11
比較例5	SmCo	65	88000	○	○	2.4	80.0	7.08
比較例6	SmCo	25	—	×	×	2.9	78.5	7.01

* 固体のため測定不能

【0059】

【表2】

* 短冊形状と立方形状の両方のボンド型磁石サンプルについて、欠けや割れなどがないかを外観検査し、次の基準で評価した。

○：割れ、欠けなし、

×：割れ、欠けの存在する磁石あり。

【0055】(7) 寸法・形状測定

短冊形状と立方形状の両方のボンド型磁石サンプルについて、寸法・形状を測定し、次の基準で評価した。

○：寸法精度±50μm以内で、かつ形状に歪みなし

×：寸法精度±50μm以上、または形状が歪んだ磁石あり

これらの試験結果を、プレス成形時の樹脂温度での使用エポキシ樹脂の溶解粘度(剪断速度10 sec⁻¹での値)とともに、表1および表2にまとめて示す。

【0056】

【比較例1】プレス成形を、金型を加熱することなく、室温の樹脂温度で行った以外は、実施例1～4と同様に成形および加熱・硬化を行って、短冊形状および立方形状の樹脂ボンド磁石サンプルを作製し、上と同様に各種特性を評価した。

【0057】

【比較例2～6】磁石粉末として、R-Fe-B系ではなく、SmCo系合金からなる磁気異方性の磁石粉末を使用した。この磁石粉末の粒度分布は38～212μmの範囲内であった。実施例1～4に記載の方法に準じて、この磁石粉末をエポキシ樹脂で被覆し、各種温度に加熱した後プレス成形を行い、熱硬化させて、短冊形状および立方形状の樹脂ボンド磁石サンプルを作製した(比較例2～5)。また、比較例1と同様に室温でプレス成形したボンド型磁石サンプルも同様に作製した(比較例6)。以上の比較例の試験結果も表1および表2に併せて示す。

【0058】

	磁気特性測定結果				曲げ強度	耐熱性	耐湿性	磁石粉損傷
	Br (KG)	iHc (kOe)	BHmax (MG0e)	磁石粉末 配向度 (%)	曲げ破壊 強度 (kgf/mm ²)	角型性 低下率 (%)	腐蝕生 状況	<38μmの 微粉発生率 (wt%)
実施例1	9.0	12.8	16.8	70	7.5	10	○	11
実施例2	8.7	12.0	16.4	69	7.4	11	○	10
実施例3	8.5	12.9	15.9	67	7.2	14	○	13
実施例4	8.2	13.0	15.1	66	7.0	15	○	14
比較例1	6.9	13.0	12.9	60	6.1	28	×	22
比較例2	8.0	9.8	15.0	—	—	—	—	4
比較例3	7.8	9.8	14.8	—	—	—	—	4
比較例4	7.7	9.8	14.5	—	—	—	—	4
比較例5	7.5	9.8	14.2	—	—	—	—	5
比較例6	7.0	9.8	13.8	—	—	—	—	7

【0060】上に示した試験結果から明らかな通り、本発明に従って磁場中温間プレス成形した磁気異方性のR-Fe-B系ボンド型磁石は、磁石粉末の充填率が大きく、空隙率が小さく、かつ、磁石粉末の配向度も大きく、磁石粉末の損傷も抑えられているので、比較例1の磁場中冷間プレス成形したボンド型磁石に比べて、磁気特性、機械的強度、耐熱性、耐食性（耐酸化性）、寸法精度がいずれも大きく向上した。

【0061】これに対し、磁石粉末がSmCoでは、同じように磁場中温間プレス成形しても、磁場中冷間プレス成形した場合に比べて各種特性の向上幅が小さく、磁場中温間プレス成形による特性の向上は、特に磁気異方性のR-Fe-B系磁石粉末の場合に顕著であることがわかる。

【0062】

【発明の効果】本発明によれば、好ましくは軟化温度が40～100℃の熱硬化性樹脂で被覆した磁気異方性の希土類・鉄系磁石粉末を、樹脂の軟化温度以上の温間で磁場中プレス成形してボンド型磁石を製造することで、下記の効果を得ることができる。

【0063】(1) 金型充填時の磁石粉末の流動性が向上し、金型に充填した時の充填密度が向上する。しかも、*

* 圧縮成形中も磁石粉末相互間および磁石粉末／樹脂間の摩擦が低減されるため、得られたボンド型永久磁石の密度が増大し、磁場印加時の磁石粉末の回転も容易になる。また、圧縮成形時に磁石粉末に対して割れ、歪みなどの損傷が生じにくくなる。その結果、磁石粉末間の空隙が少なく、磁石粉末の充填率が高いボンド型永久磁石が得られ、磁石粉末配向度も向上するので、磁気特性が向上する。さらに磁石粉末の損傷の抑制も磁気特性の向上につながる。

【0064】(2) 原料磁石粉末が完全に樹脂で結合され、しかも磁石粉末間の空隙が少なく、高密度で充填されるため、ボンド型永久磁石の機械的強度が向上し、割れ、カケも生じず寸法精度も向上する。

【0065】(3) 原料磁石粉末の表面が熱硬化性樹脂で均一に被覆されているので、成形および加熱硬化中の磁石粉末の酸化が防止され、磁石粉末の酸化による磁気特性の低下を抑制できる。また、得られたボンド型永久磁石においても、磁石粉末の表面が樹脂で均一に被覆されていることから、使用時に高温高湿の環境下に曝された場合も磁石粉末の酸化防止作用が持続し、耐熱性および耐食性が良好となる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁹

H01F 1/053

識別記号 片内整理番号

F1

技術表示箇所

H01F 1/04

H

(72)発明者 浅野 正宏

大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号

住友特殊金属株式会社山崎製作所内